

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-236329

(43)Date of publication of application : 13.09.1996

(51)Int.Cl.

H01F 1/06

B22F 1/02

H01F 1/14

(21)Application number : 07-326727

(71)Applicant : GENERAL MOTORS CORP <GM>

(22)Date of filing : 15.12.1995

(72)Inventor : GAY DAVID EARL
LEE HOWARD H-D

(30)Priority

Priority number : 94 357890 Priority date : 16.12.1994 Priority country : US

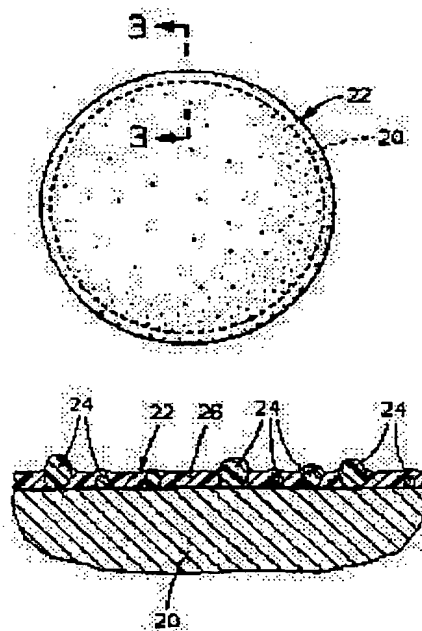
(54) LUBRICATING FERROMAGNETIC PARTICLE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain hard magnetic materials and soft magnetic materials with high density and high magnetic characteristics by coating ferromagnetic particles with a lubricating high molecular outer shell including small amounts of insoluble organic lubricating agent particles sealed in the coating of continuous soluble thermoplastic coupling agent.

SOLUTION: This is moldable particle materials for compression molding on a ferromagnetic product including plural ferromagnetic particles uniformly dispersed on an entire polymer matrix, and each moldable particle is constituted of a ferromagnetic particle 20 having a lubricating outer shell 22 sealing the ferromagnetic particle 26 in the surrounding. Then, the lubricating outer shell 22 includes small amounts of insoluble organic lubricating agent particles 24, and the lubricating agent particles 24 are made smaller than the ferromagnetic particles 20, and the lubricating agent particles 24 are connected with the ferromagnetic

particles 20 by coating 26 of soluble thermoplastic coupling agent sealing the lubricating agent particles 24. Thus, satisfactory dry flowability can be obtained at the time of compression molding, and a magnetic material product with high density can be formed.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 12.02.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 07.11.2000

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-236329

(43) 公開日 平成8年(1996)9月13日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 1/06			H 0 1 F 1/06	A
B 2 2 F 1/02			B 2 2 F 1/02	C
H 0 1 F 1/14			H 0 1 F 1/14	Z

審査請求 未請求 請求項の数25 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願平7-326727	(71) 出願人	590001407 ゼネラル・モーターズ・コーポレーション GENERAL MOTORS CORPORATION アメリカ合衆国ミシガン州48202, デトロ イト, ウェスト・ランド・ブルバード 3044
(22) 出願日	平成7年(1995)12月15日	(72) 発明者	デイヴィッド・アール・ゲイ アメリカ合衆国インディアナ州46060, ノ ウブルスヴィル, イースト・ハンドレッド サーティファースト・ストリート 12310
(31) 優先権主張番号	3 5 7 8 9 0	(74) 代理人	弁理士 湯浅 恭三 (外5名)
(32) 優先日	1994年12月16日		
(33) 優先権主張国	米国 (U S)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 潤滑性強磁性粒子

(57) 【要約】

【課題】 潤滑剤粒子が強磁性粒子と共に成形性粒子素
材全体に実質的に均一に分布し、のちに凝離する傾向が
なく、かつ乾燥粒子の流動性および封入粒子の高温圧縮
性が改良された素材を提供する。

【解決手段】 熱可塑性結合剤の被膜に埋封された多数
の有機潤滑剤粒子を含む潤滑性外殻を備えた強磁性粒子
素材。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 高分子マトリックス全体に均一に分散した多数の強磁性粒子を含む、磁化性製品に圧縮成形するための成形性粒子素材であって、成形性粒子それぞれが強磁性粒子を封入する潤滑性外殻を周りに保有する強磁性粒子を含み、外殻が少量の多数の実質的に不溶性である有機潤滑剤粒子を含み、潤滑剤粒子が強磁性粒子より小さく、かつそれらの潤滑剤粒子を埋封する可溶性の熱可塑性結合剤の被膜により強磁性粒子に結合している粒子素材。

【請求項 2】 潤滑剤粒子が潤滑性のステアレートおよびフルオロカーボンよりなる群から選ばれる、請求項 1 に記載の成形性粒子素材。

【請求項 3】 強磁性粒子が希土類金属系の硬質磁性材料を含む、請求項 2 に記載の成形性粒子素材。

【請求項 4】 潤滑剤粒子がステアレートを含む、請求項 3 に記載の成形性粒子素材。

【請求項 5】 希土類がネオジムを含み、ステアレートがエチレンビスステアルアミドを含む、請求項 4 に記載の粒子素材。

【請求項 6】 強磁性粒子が軟磁性材料を含み、かつ潤滑剤粒子がフルオロカーボンを含む、請求項 2 に記載の粒子素材。

【請求項 7】 フルオロカーボンがポリテトラフルオロエチレンを含む、請求項 6 に記載の粒子素材。

【請求項 8】 外殻が、強磁性粒子に隣接する実質的に潤滑剤粒子を含有しない下層、ならびに下層の上にある結合剤およびフルオロカーボン粒子を含む上層を含めた少なくとも 2 層の高分子層を含む、請求項 6 に記載の粒子素材。

【請求項 9】 下層が上層と化学的に異なる、請求項 8 に記載の粒子素材。

【請求項 10】 下層がポリエーテルイミドを含み、かつ結合剤がアクリレートを含む、請求項 9 に記載の粒子素材。

【請求項 11】 アクリレートがメチルメタクリレート-ブチルメタクリレートを含む、請求項 10 に記載の粒子素材。

【請求項 12】 フルオロカーボンがポリテトラフルオロエチレンを含む、請求項 10 に記載の粒子素材。

【請求項 13】 ポリテトラフルオロエチレン粒子が封入強磁性粒子の約 0.05-約 0.5 重量%を構成する請求項 7 に記載の粒子素材。

【請求項 14】 ポリテトラフルオロエチレン粒子が封入強磁性粒子の約 0.1-約 0.3 重量%を構成する請求項 7 に記載の粒子素材。

【請求項 15】 外殻が成形性粒子の約 0.25-約 4.25 重量%を構成する請求項 2 に記載の粒子素材。

【請求項 16】 強磁性粒子が軟磁性材料を含み、かつ結合剤がポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、ポリ

スルホン、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリル酸、ポリビニルピロリドン、ポリスチレン無水マレイン酸、ポリスチレン、シリコンおよびポリアクリレートよりなる群から選ばれる、請求項 2 に記載の粒子素材。

【請求項 17】 外殻が粒子の約 0.25-約 4.25 重量%を構成する請求項 1 に記載の粒子素材。

【請求項 18】 潤滑剤粒子が外殻の約 8-約 20 重量%を構成する請求項 17 に記載の粒子素材。

10 【請求項 19】 強磁性粒子が硬質磁性材料を含み、高分子マトリックスがポリアミド、エポキシ樹脂およびポリビニリジンフルオリドよりなる群から選ばれ、かつ結合剤がポリスチレン、ポリカーボネート、ポリスルホンおよびポリアクリレートよりなる群から選ばれる、請求項 1 に記載の粒子素材。

【請求項 20】 強磁性粒子が軟磁性材料を含み、高分子マトリックスが熱可塑性のポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、ポリスルホン、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリル酸、ポリビニルピロリドンおよびポリスチレン無水マレイン酸よりなる群から選ばれ、かつ結合剤が熱可塑性のポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、ポリスルホン、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリル酸、ポリビニルピロリドン、ポリスチレン無水マレイン酸、シリコン、ポリスチレンおよびポリアクリレートよりなる群から選ばれる、請求項 1 に記載の粒子素材。

【請求項 21】 フルオロカーボンがポリテトラフルオロエチレンを含み、かつ結合剤がメチルメタクリレート-ブチルメタクリレートを含む、請求項 16 に記載の粒子素材。

【請求項 22】 高分子マトリックスがポリエーテルイミドを含み、潤滑剤がフルオロカーボンを含み、かつ結合剤がポリアクリレートを含む、請求項 20 に記載の粒子素材。

【請求項 23】 軟磁性材料が鉄を含み、高分子マトリックスがポリエーテルイミドを含み、潤滑剤がポリテトラフルオロエチレンを含み、かつ結合剤がメチルメタクリレート-ブチルメタクリレートを含む、請求項 22 に記載の粒子素材。

【請求項 24】 外殻が、強磁性粒子に隣接する実質的に潤滑剤粒子を含有しない下層、ならびに下層の上にある結合剤およびフルオロカーボン粒子を含む上層を含めた少なくとも 2 つの高分子層を含む、請求項 1 に記載の粒子素材。

【請求項 25】 上層が下層より低いメルトフロー温度を有する、請求項 24 に記載の粒子素材。

【発明の詳細な説明】

【0001】本発明は、多数の有機潤滑剤粒子を埋封した高分子外殻にそれぞれが封入された強磁性粒子素材に

関するものである。

【0002】発明の背景

それぞれが熱可塑性または熱硬化性高分子外殻に封入された多数の強磁性粒子から、電磁デバイス（たとえばトランス、誘導子、モーター、発電機、リレーなど）に用いる硬質（すなわち永久）および軟（すなわち一時）磁心を圧縮成形することは知られている。

【0003】軟磁心は強磁性粒子（すなわち約1000ミクロン未満）、たとえば鉄、および特定のケイ素、アルミニウム、ニッケル、コバルトなど、それらの合金

（以下、全般的に鉄と呼ぶ）から成形され、外部供給源（たとえばその周りに巻き付けられた電気コイルを通して流れる電流）からそこへ誘導される磁束を集束させるために用いられる。硬質磁石と異なり、それらの磁心はいったん磁化されても極めて容易に消磁される。すなわち生じた磁気を取り除くためにわずかな保磁力（すなわち約200エルステッド未満）を要するにすぎない。たとえばワードらの米国特許第5,211,896号明細書にはこのような軟磁心形成材料が示されており、その場合高分子外殻は熱可塑性のポリエーテルイミド、ポリ

アミドイミドまたはポリスルホンからなり、これが成形後に互いに融着して（1）鉄粒子を埋封するポリマーマトリックスを形成し、（2）AC用途における渦電流の損失、従って全コアロス（すなわち渦電流およびヒステリシスの損失）を有意に低下させるために、鉄粒子を次の粒子から絶縁する。この目的に使用しうる他のマトリックス形成性熱可塑性ポリマーは、当業者に知られているもののうち特にポリカーボネートおよびポリフェニレンエーテルである。

【0004】永久（すなわち硬質）磁石は磁性フェライト、希土類金属合金（たとえばSm-CO、Fe-Nd-Bなど）などから圧縮成形し、次いで永久磁化しうることも知られている。たとえばシェインらの米国特許第5,272,008号明細書には、熱可塑性ポリスチレン外層でオーバーコートされた熱硬化性のマトリックス形成性エポキシ樹脂下層からなる複合高分子外殻に封入された鉄-ネオジウム-ホウ素粒子よりなるこのような硬質磁石形成材料の1つが示されている。ポリスチレンは、エポキシ樹脂被覆された粒子がエポキシ樹脂の硬化前に互いに粘着するのを防止する。

【0005】ワードらの米国特許第5,211,896号およびシェインらの米国特許第5,272,008号においては、外殻形成用ポリマーを適宜な溶剤に溶解し、流動する強磁性粒子の流れをこの溶液で、いわゆる“ウルスター（Wurster）”法により吹付け被覆している。ウルスター型の吹付け被覆装置は有孔床を備えた円筒形の外側容器を含み、加熱されたガスがこれを通して上向きに通過して内部の強磁性粒子のバッチを加熱し、かつ流動させる。同心の開放端型の内側シリンダーが外側容器の有孔床の中央上方に吊るされている。内

側シリンダーの下方中央に位置する吹付けノズルは、流動する強磁性粒子が内側シリンダー内で噴霧液内を上方へ通過するのに伴って、溶剤に溶解された外殻形成用ポリマーを内側シリンダー（すなわち被覆帯域）内へ上向きに噴霧する。粒子は内側シリンダーの中央を通過して上方へ、そして内側シリンダーと外側シリンダーの間を下方へと循環する。金属粒子を流動化するガス（たとえば空気）は溶剤を気化させて、溶解している外殻形成用ポリマーを各粒子の表面に被膜として析出させる作用もする。内側シリンダー内の被覆帯域を反復通過したのち、各粒子の表面全体にそれらの粒子を完全に封入するのに十分な厚さのポリマーが蓄積する。

【0006】ルツらの米国特許第5,198,137号は、粉末の流動性および成形品の透磁率を改良し、かつストリッピングおよびスライディングダイ放出圧を低下させるために、最終製品に成形する前に窒化ホウ素潤滑剤粒子をポリマー封入粒子と機械的にブレンドまたは混合している。さらにエチレンビスステアレートアミド潤滑剤粒子—商品名アクラワックス（ACRAWAX、登録商標）で市販されている—が従来ポリマー封入金属粒子と混合／ブレンドされている。しかし潤滑剤粒子と封入粒子との機械的ブレンドまたは混合は、（1）金属粒子それぞれを覆っているポリマー粒子に損傷を与える可能性があり、（2）潤滑剤粒子を粒子素材全体に均一に分布させず、（3）種々の密度および粒度を有する不揃いの粒子素材を与え、結果的に凝離（segregation）を生じ、かつ（4）材料の調製に付加的な経費がかかる。

【0007】発明の概要

本発明はそれぞれが潤滑性的高分子外殻に封入された強磁性（すなわち軟磁性または硬質磁性）粒子素材を提供する。潤滑性外殻は実質的に連続した可溶性熱可塑性結合剤の被膜に埋封された少量の（minority amount）多数の実質的に不溶性である有機潤滑剤粒子を含む。有機潤滑剤は外殻形成用ポリマーに損傷を与えず、またはそれらが強磁性粒子を互いに分離および／または遮断するのを妨害しない。ここで、本明細書においては、“少”量とは、50重量%未満を意味する。

“実質的に不溶性”とは、可溶性でないか、またはその不溶性部分に対する結合剤として効果的に機能するのには不十分な量の溶質が生じるほどわずかに可溶性であるにすぎないことを意味する。“有機”とは、炭素系化合物を意味する。潤滑剤粒子は強磁性粒子それぞれに付着してそれらを覆うので、潤滑剤はそれらを保有する強磁性粒子と共に粒子素材全体に実質的に均一に分布し、のちに凝離する傾向がなく、かつ乾燥粒子の流動性および封入粒子の高圧縮性を改良する。外殻は単層からなっていないもよいが、好ましくは少なくとも2層、すなわちマトリックス形成性の下層すなわち基底層、および潤滑性の上層すなわちトップコートからなる。2層外殻を備

えた粒子から製造された成形品は、単層外殻の場合より高い密度および高い抵抗率をもつことが証明された。マトリックス形成層に用いられるポリマーと上層（すなわちトップコート）中に用いられる結合剤とは同一であっても、異なってもよい。しかしこれらの層はあるポリマーの下層、および圧縮成形中に強磁性粒子の著しく変形した面においてすらより効果的な粒子間絶縁をもたらす異なるポリマーの上層からなることが好ましい。極めて好ましい態様においては、粒子間絶縁の損失なしに最良の緻密化を得るために、上層は下層より低いメルトフロー温度をもつであろう。このような効果の1尺度は、それらの粒子から製造された成形品の抵抗率である。高い抵抗率は、より良好な粒子間絶縁、およびこれに対応して、高い周波数のAC軟磁心用途における低いコアロスに相当する。有機潤滑剤粒子は外殻の最外層、すなわちそれらが最も有効となる封入粒子表面付近に濃縮されることが最も好ましいであろう。

【0008】好ましい成形性永久磁化性粒子素材は、実質的に連続したポリスチレン結合剤被膜に埋封されたエチレンビスステアレートアミド（たとえばアクラックス、登録商標）潤滑剤粒子でトップコートされたエポキシ樹脂下層にそれぞれ封入された鉄-ネオジム-ホウ素粒子からなる。約0.2重量%未満の潤滑剤配合量で、それらの粒子はこのようなトップコートを含まない同様な粒子より良好な乾燥流動性をもち、かつより高い密度の成形品を与える。アクラックス（登録商標）約0.2重量%以上では、流動性は依然として良好であるが、成形品の有機物含量が増大した結果として、密度が低下し始める。約0.3%の潤滑剤配合量は好ましいが、約0.5%以上の配合量により得られる利点は密度低下を相殺するのには不十分である。

【0009】好ましい成形性軟磁心形成用粒子素材は、実質的に連続した熱可塑性ポリアクリレート（たとえばアクリロイド（ACRYLOID）B-66（登録商標）、ローム・アンド・ハースから）結合剤被膜に埋封されたポリテトラフルオロエチレン（PTFE）（たとえばテフロン（Teflon、登録商標））潤滑剤粒子でトップコートされたポリエーテルイミド（たとえばウルテム（ULTEM、登録商標））に封入された鉄粒子からなる。それらのPTFE被覆された粒子はこのようなトップコートなしに製造された、または強磁性粒子をPTFEと単に混合/ブレンドすることにより製造された同様な粒子より良好な乾燥流動性をもち、かつより高い密度の成形品を与える。成形品の密度に不都合な作用を及ぼすことなく目的とする利点を得るためには、約0.05-約0.5重量%のPTFE配合量が有効であり、約0.1-約0.3%が好ましい。

【0010】潤滑性外殻は、それに用いる被膜形成性結合剤の溶液に懸濁された潤滑剤粒子のスラリー中へ強磁性粒子を撈拌混入し、次いで溶剤を除去する（たとえば

気化により）だけで、強磁性粒子上に形成することがができる。しかし流動流れ型の（たとえばウルスター法）吹付け被覆法を用いて強磁性粒子上に潤滑剤を析出させることが好ましく、その場合は結合剤ポリマーの溶液中における潤滑剤粒子の懸濁液からなるスラリーを流動している強磁性粒子の流れの中へ吹き付け、溶剤を蒸発させると、これにより潤滑剤粒子は強磁性粒子を被覆した結合剤ポリマー中に全体的に分散した状態で残される。より詳細には、適切な溶剤に溶解した可溶性、熱可塑性の、被膜形成性ポリマー結合剤からなるキャリアー溶液を調製する。多数の小さな潤滑剤粒子をこの結合剤溶液に懸濁し、これにより吹き付け用スラリーを得る。潤滑剤粒子の平均粒度は強磁性粒子の平均粒度よりはるかに小さいが、それらをより大きな強磁性粒子の表面に保持する結合剤ポリマー被膜層の厚さよりは大きい。次いで強磁性粒子をガス流中で流動化し（たとえばウルスターコーターの場合）、強磁性粒子それぞれの表面がスラリーで被覆されるようにスラリーで吹き付け被覆する。次いで結合剤溶液から溶剤を蒸発させると、潤滑剤粒子が可溶性熱可塑性ポリマー結合剤中に埋封された状態で残される。溶剤が除去されると、潤滑剤被覆された強磁性粒子はサラサラしており、それぞれが自身の潤滑剤およびマトリックス形成性ポリマーを保有する。その結果、潤滑剤粒子はそれらを保有する強磁性粒子と共に実質的に粒子素材全体に均一に分布し、取り扱い/加工に際してそれから凝離または分離しにくい。さらに潤滑剤は強磁性粒子の外表面に位置する。ここはまさに粒子の乾燥流動性を改良し、かつ粒子の高温圧縮性を向上させるために最も必要とされる場所であり、これにより、従来強磁性粒子素材中へ単に機械的に混合/ブレンドしただけの潤滑剤によっては達成し得なかったほどの粒子の緻密化が増進される。最後に粒子を型に装入し、数個の粒子の外殻が熔融するのに、または他の形で（たとえば架橋）互いに結合するのに十分な圧力下で（すなわちマトリックス形成性層の組成に応じて加熱下に、または加熱せずに）圧縮すると、強磁性粒子が実質的に全体に均一に分布した、すなわち機械的にブレンドされた粒子素材から製造した成形品の特色である被覆されていない粒子の小さなクラスターに凝集したのではなく、それぞれが隣のものからマトリックスポリマーにより分離された最終成形品が形成される。

【0011】発明の詳細な記述

強磁性粒子はそれぞれ、実質的に連続した可溶性熱可塑性結合剤の被膜中に埋封された少量（すなわち約50重量%未満）の多数の不溶性有機潤滑剤粒子を含む潤滑性高分子外殻に封入されている。外殻は1または2以上のポリマー層からなっている。好ましくは外殻は2以上の層からなり、潤滑剤粒子は最外層に濃縮されている。強磁性粒子それぞれを潤滑剤粒子保有ポリマー層で被覆する任意の方法が許容されるが、これらの層は流動

化された強磁性粒子を可溶性熱可塑性結合剤の溶液に懸濁した潤滑剤粒子のスラリーで吹付け被覆することにより形成するのが好ましい。次いで結合剤に対する溶剤を除去すると、強磁性粒子それぞれの表面に密着した状態で残された結合剤ポリマー中に埋封された潤滑剤粒子が残る。吹付け被覆法によれば強磁性粒子それぞれがすべて確実に別個に被覆され、これにより強磁性粒子および潤滑剤粒子ならびに得られた不均質素材の双方が凝塊またはクラスターを形成するのが避けられ、かつ潤滑剤と強磁性粒子がその後凝離するのも避けられる。

【0012】潤滑剤粒子は好ましくは外殻の最外表付近に濃縮されており、そこでそれらは粒子間潤滑剤としてより効果的に機能し、これによってより良好な流動性を増進し、かつそれらの粒子から高温成形された製品の緻密度が最適となる。従って、外殻が複数のポリマー層からなる場合、潤滑剤-結合剤層は最外層（すなわちトップコート）を構成することが最も好ましい。潤滑剤の量は用途（すなわち硬質磁石または軟磁石）、潤滑剤の組成、ならびにマトリックス層および結合剤層の組成によって異なるであろう。一般に潤滑剤粒子は、成形される製品の性質および潤滑剤の組成に応じて、封入強磁性粒子の約0.05-約0.5重量%、外殻の約5-50重量%、そして多層外殻の潤滑剤-結合剤層の約25-約75重量%からなるであろう。エポキシ樹脂下層の上層としてのスチレン結合アクラワックス（登録商標）を用いたFe-Nd-B硬質磁性粒子については、良好な乾燥粒子流動性および成形に際しての緻密化を得るために素材全体の約0.3重量%以上のアクラワックスを必要としない。これより高いアクラワックス配合量では卓越した流動性は達成されるが、密度が低下する。同様に、

【0013】強磁性粒子は、粒子の性質に応じて平均粒度約5-約500ミクロンをもち、平均粒度約100-約120ミクロンである。好ましい鉄粒子はヘガネス・カンパニーから等級1000C（平均100ミクロン）またはSC40（平均180）として市販されている。同様に硬質磁石の製造に適したフェライトは粒度約1-約100ミクロンに及び、平均粒度約20-約60ミク

ロンである。同様に硬質磁石の製造に適した希土類強磁性粒子（たとえばSm-CO、またはFe-Nd-B）は粒度約1-約100ミクロンに及び、平均粒度約20-約60ミクロンである。

【0014】強磁性粒子の表面に密着した潤滑剤粒子は、それらを支持および保有する強磁性粒子よりはるかに小さく、従って著しい数のそれらが容易に強磁性粒子を被覆しうる。平均潤滑剤粒度は選ばれた個々の潤滑剤に応じて異なるであろうが、一般に約1-約15ミクロンであろう。

【0015】潤滑剤粒子を埋封し、かつ強磁性ポリマーの表面に結合させるための結合剤として用いられる可溶性熱可塑性ポリマーの量は、それらの熱可塑性ポリマーの組成、および封入用外殻が1層からなるか、または2以上の層からなるかに応じて、著しく異なる可能性がある。これに関し、単層外殻の場合のように潤滑剤粒子に対する熱可塑性結合剤が成形品において強磁性粒子に対する一次マトリックス形成性ポリマーとしても作用する場合には、外殻が1ポリマー（すなわちマトリックス形成性ポリマー）の第1下層、およびこのマトリックス形成性ポリマー層上で潤滑剤粒子を接着する作用をし、かつマトリックス形成性ポリマー層により付与される粒子間絶縁を補助する第2結合剤ポリマー上層からなる場合より、多量の熱可塑性結合剤が必要であろう。多層外殻においては、潤滑剤粒子の平均直径は潤滑剤を強磁性粒子に接着する結合剤ポリマーの厚さより大きいことが好ましいであろう。

【0016】軟磁性粒子については、マトリックス形成性ポリマーと潤滑剤粒子に対する熱可塑性高分子結合剤が同一材料であってもよい。このような場合、マトリックス形成性ポリマーの溶液を、流動している強磁性粒子に連続的に吹付け被覆することが好ましいであろう。ただし最初は吹付け溶液は潤滑剤粒子を含有せず、単に各粒子上に潤滑剤を含有しない層を蓄積するために用いられるであろう。潤滑剤を含有しない十分に厚い層が形成されたのち、有機潤滑剤粒子を残りのマトリックス形成性ポリマー溶液補給材料に添加して混合し、外殻形成用被覆操作を完了するために用いられる吹付けノズルへこのスラリーをへ送入し、潤滑剤を含有しないポリマー層の上に潤滑剤に富む最外層を析出させる。しかし好ましくは、潤滑剤に富む外層はマトリックス形成性の下層と異なる熱可塑性結合剤ポリマーを含み、これにより少なくとも2種類の異なるポリマーと潤滑剤粒子の複合材料である多層外殻が形成されるであろう。たとえば、アセトンに溶解したメチルメタクリレート-ブチルメタクリレートポリマー（たとえばアクリロイドB-66（登録商標）、ローム・アンド・ハースから）の溶液中のポリテトラフルオロエチレン〔PTFE〕粒子（たとえばテフロン（登録商標））のスラリーでオーバーコートされたポリエーテルイミド（たとえばウルテム（登録商

標)、ゼネラル・エレクトリック・カンパニーから) かなる、粒子を含有しない第1マトリックス形成性ポリマー下層を備えた鉄粒子を60トン/㎡で高温圧縮すると、他のいずれの方法で封入されたものより高い密度(すなわち7.5-7.6g/cc)およびより高い抵抗率(すなわち1.0-3.0Ω-cm)を有する成形品が得られることが見出された。事実それらの成形品は、0.5重量%のウルテム(登録商標)で互いに接着された鉄粒子から製造された成形品の理論的密度7.613g/ccに近接する。抵抗率は、外殻を構成するポリマー系により達成される粒子間絶縁度の簡便な尺度である。高い抵抗率および高密度の成形品は、高い透磁率(より高い密度に起因する)および低いコアロス(良好な粒子間絶縁率に起因する)の両方を備えているので、高周波AC用途に用いる最良の軟磁心が作成される。2種類の異なるポリマーを析出させて多層外殻を形成する場合、結合剤ポリマーに対する溶剤が下層ポリマーに対しても溶剤であるのは望ましくないと思われる。結合剤層に対する溶剤が下層に対しても溶剤である場合、下層の浸食が起こる可能性があり、また成形に際しての最適流れに関して上層が下層に強固に粘着しすぎる場合がある。最後に、トップコートを構成するポリマーはアンダーコートより低いメルトフロー温度をもつことが好ましい。これによっても粒子間絶縁率の損失なしに緻密化するのが可能になるとと思われる。

【0017】被覆後に、外殻のマトリックス形成性ポリマー成分を互いに融着させ(たとえば熱可塑性樹脂に関して)または他の様式で結合させ(たとえば熱硬化性樹脂に関しての架橋)、それに強磁性粒子を完全に埋封するのに十分な温度および圧力を用いて、封入された粒子を目的の形状に圧縮成形する。成形圧力は一般に約50-約60トン/㎡であろう。成形温度はマトリックス形成性ポリマー(すなわち下層)の組成に依存するであろう。

【0018】強磁性粒子の表面にある潤滑剤粒子は、恐らく粒子間摩擦を低下させることによって、封入粒子のより良好な乾燥流動性および緻密化を増進するのである。さらにポリマー結合したフルオロカーボン(たとえばPTFE)トップコートは、このような結合剤-フルオロカーボントップコートをもたない同様に作成された磁心と比較して、軟磁心の抵抗率を10倍向上させた。

【0019】永久磁石に関しては、強磁性粒子は永久磁化性材料、たとえばフェライト、希土類磁石合金などを含み、約20-約100ミクロンの平均粒径(たとえばFeNdBについては100ミクロン)をもち、外殻は好ましくは2つの別個の層を含むであろう。第1層または下層は:(1)マトリックス形成性ポリマーからなる;(2)強磁性粒子上に直接に、別個の第1層として析出する;かつ(3)好ましくはポリアミド、たとえばナイロン11、ナイロン6およびナイロン612または

エポキシ樹脂、たとえばシェル・カンパニーによるノベラック(NOVOLAC)からなる。しかし他のポリマー、たとえばポリフッ化ビニリデン(PVDF)も使用しうる。第2層または上層は、好ましくはポリスチレンからなるが、他の可溶性熱可塑性樹脂、たとえばポリカーボネート、ポリスルホンまたはポリアクリレートに代わり用いることもできる。上層に含有される潤滑剤粒子は、好ましくは平均粒度約1-15ミクロンの潤滑性有機ステアレートからなり、極めて好ましくはエチレンビスステアレートアミド粒子からなるであろう。フルオロカーボン系潤滑剤(たとえばPTFE)をステアレートの代わりに用いてもよい。不溶性の潤滑剤粒子を可溶性熱可塑性ポリマーのキャリアー溶液に懸濁して、磁性粒子それぞれを被覆するのに適したスラリーを調製する。不溶性潤滑剤粒子のためのキャリアー溶液は、好ましくはトルエンまたはN-メチルピロリドンに溶解したポリスチレンからなる。しかし上記に述べた他の任意の可溶性熱可塑性樹脂をそれに適した溶剤、たとえば塩化メチレンまたはアセトンなど、個々の可溶性ポリマーおよび下層に適したものと組み合わせて用いることもできる。このような永久磁化性粒子については、ポリマー外殻は好ましくは封入磁性粒子の約1.15-約4.25重量%からなるであろう。ステアレート系潤滑剤は、外殻の約8-約12重量%、および外殻の潤滑剤-結合剤-外層の約25-約40重量%からなるであろう。

【0020】軟磁心(たとえば鉄強磁性粒子)については、マトリックス形成性ポリマーは熱可塑性ポリエーテルイミド(好ましい)、ポリアミドイミド、ポリスルホン、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリル酸、ポリ(ビニルピロリドン)およびポリ(スチレン無水マレイン酸)を含むであろう。このような軟磁心については、潤滑剤粒子に対する結合剤粒子はマトリックス形成性ポリマーと同一か、または異なってもよい。従って結合剤は上記のマトリックス形成性ポリマーからなるか、または異なる熱可塑性ポリマー、たとえばポリスチレン、シリコンもしくはポリアクリレート(好ましい)からなってもよい。潤滑剤粒子は、好ましくは潤滑性フルオロカーボン、極めて好ましくはポリテトラフルオロエチレン(PTFE)からなる。熱可塑性結合剤ポリマーを適切な溶剤、たとえば塩化メチレン、または種々の溶剤のうち任意のもの、たとえばエタノール、トルエン、アセトンもしくはN-メチルピロリドンなど、個々の可溶性ポリマーに適したものに溶解する。軟磁心を成形するためには、強磁性粒子上の外殻は好ましくは封入鉄粒子の約0.25-約2.5重量%(好ましくは約0.4-約0.8重量%)からなるであろう。PTFE潤滑剤粒子は:(1)封入鉄粒子の約0.05-約0.5重量%;(2)外殻の約12-約20重量%;および(3)結合剤-潤滑剤層(すなわち多層外殻について)の約25-

約 50 重量% からなる。極めて好ましい組み合わせは、メチルメタクリレート-ブチルメタクリレートポリマー系結合剤（たとえばアクリロイド B-66、ローム・アンド・ハースから）に埋封されたポリテトラフルオロエチレン（PTFE）粒子の層でトップコートされたポリエーテルイミド（たとえばウルテム（登録商標）、ゼネラル・エレクトリック・カンパニーから）からなる、潤滑剤を含有しない第 1 下層を備えた鉄粒子からなる。60 トン/1 m² で成形すると、それらのポリアクリレート結合 PTFE で潤滑処理された強磁性粒子は、試験された他のいずれの結合剤-潤滑剤の組み合わせより高い密度（すなわち 7.629 g/cc に及ぶ）およびより高い抵抗率（すなわち 1.3 Ω-cm）を有する成形品が得られる。この抵抗率は試験した他の結合剤-潤滑剤の組み合わせの抵抗率のほとんど 10 倍である。この組み合わせの材料によれば、全ポリマー含量（すなわちマトリックス、結合剤および潤滑剤）約 0.5% の粒子試料において異例に高い透磁率（すなわち 150 エルステッドの磁界において 40 G Oe）および低い渦電流損失（50 Hz の周波数において 50 J/m³）が得られた。あるいは PTFE の代わりに他の潤滑性フルオロカーボン、たとえば（1）ペルフルオロアルコキシエチレン、（2）ヘキサフルオロプロピレン、（3）塩化トリフルオロエチレン、（4）塩化トリフルオロエチレンとエチレンのコポリマー、（5）テトラフルオロエチレンとエチレンのコポリマー、（6）フッ素化ビニリデン、（7）フッ素化ビニルポリマーなどを使用しう。

【0021】潤滑剤粒子を強磁性粒子の表面に析出させるためには、潤滑剤粒子を結合剤溶液に懸濁させてそのスラリーを調製し、そして好ましくは図 1 に模式的に示されるウルスター型の装置内で流動している鉄粒子の流れ上に吹付け被覆する。本質的にはウルスター型の装置は多数の孔を有する床 4 を備えた外側円筒形容器 2、および外側容器 2 と同心であり、かつ床 4 の上方に吊るされている内側シリンダー 8 を含む。それぞれ床 4 の中央およびプレート 4 の周縁にある孔 10 および 20 はそれらの間にあるものより大きい。吹付けノズル 12 が内側シリンダー 8 の下方の床 4 の中央に位置し、被覆すべき潤滑剤-結合剤スラリーの噴霧液 14 を内側シリンダー 8 の被覆帯域内へ向ける。封入されるべき鉄粒子（図示されていない）を床 4 の上に置き、容器 2 を閉じる。粒子を流動させ、かつそれらをこのコーター内で矢印 16 により示した方向に循環させるのに十分な温風を、床 4 の孔 6 を通して送入する。これに関して床の中央にある大きい方の開口 10 は、内側および外側シリンダーそれぞれ 8 および 2 の間の環状帯域 18 より内側シリンダー 8 を通ってより多量の空気が上方へ流れるのを可能にする。粒子が内側シリンダー 8 の頂部から出て大きい方のシリンダー 2 へ進入するのに伴って、それらは減速し、半径方向に外側へ移動し、環状帯域 18 を通って落下す

る。外側容器に近接した大きい方の開口 20 は外側容器 2 の外壁の内面に沿ってより多量の空気を供給し、これは粒子が外壁に静電付着するのを防ぎ、かつ粒子が中央シリンダー 8 内へ曲がる方向転換クッションを提供する。

【0022】始動期間中は、粒子は床 4 を通過する加熱空気により目的とする被覆温度に加熱されるまで被覆用噴霧液なしに循環される。こうして粒子が予熱されたのち、目的とする潤滑剤スラリーをスプレーノズル 12 に送入し、ここで空気流がそれを上向きに粒子の循環床中へ噴霧し、そして目的量の潤滑剤および結合剤が強磁性粒子上に析出するまでこのプロセスが継続される。スラリーを混合タンクからノズルへ導く配管に音波または超音波振動などを付与して、粒子をノズル 12 に至るまで懸濁状態に維持することができる。強磁性粒子を流動化するために必要な空気の量は粒子のバッチサイズ、床 4 にある孔の厳密な大きさおよび分布、ならびに床 4 からの内側シリンダー 8 の高さによって異なる。空気流は、粒子床が流動し、かつ前記に従ってコーター内で循環するように調整される。

【0023】被覆後に種々の温度および圧力で粒子を圧縮成形してマトリックス形成性ポリマー粒子を互いに融着させ（すなわち熱可塑性樹脂）、または他の様式で結合させて（すなわち熱硬化性樹脂についての架橋）、強磁性粒子を内部に完全に埋封するマトリックスを形成する。熱可塑性マトリックスポリマーについては、ポリマーを溶融させるために高温が用いられるであろう。室温で流動性である熱硬化性ポリマー（たとえばある種のエポキシ樹脂）については、高温を必要とせず、外殻を相互に融合させて連続マトリックス相の複合材料を形成するのに室温成形で十分である。

【0024】図 2 および 3 は本発明の 1 態様を示し、この場合強磁性コア 20 は連続ポリマー被膜 26 内、特にその最外表に埋封された多数の不溶性有機潤滑剤粒子 24 を含む単層高分子外殻 22 に封入されている。

【0025】図 4 および 5 は本発明の好ましい態様を示し、この場合強磁性コア心 28 は連続ポリマー被膜 36 内に埋封された多数の潤滑剤粒子 34 を含む第 2 の結合剤上層 32 で被覆された、潤滑剤を含まない第 1 マトリックス形成性ポリマー下層 30 を備えている。

【0026】例 1

本発明の 1 具体例においては、それらの製造業者（ヘガネス・メタルズ）により等級 1000C と定められた鉄粒子（平均粒度 100 ミクロン）15 kg をまず、10 重量%のポリエーテルイミド（すなわちウルテム 1000）および 90 重量%の塩化メチレン（以下 MeCl₂）からなる溶液で吹付け被覆した。こうして被覆された粒子を次いで、9 重量%のエチレンビスステアレートアミド（すなわちアクラワックス C）、4.5 重量%のウルテム 1000 および 86.5 重量%の MeCl₂

13

からなるスラリーで、グラット・コーポレーションから購入したウルスター型コーター内において吹付け被覆した。アクラワックスCは約6ミクロンの平均粒度を有していた。コーターは直径約17.8cm(7")の外側容器(すなわち有孔床の高さにおいて)、および長さ/高さ25.4cm(10")、直径約7.6cm

(3")の内側シリンダーを備えていた。外側容器は床の上方約40.6cm(16")の距離にわたって直径約22.9cm(9")にまで広がり、次いで円筒形になる。内側シリンダーの底はコーターの床から約1.3cm(1/2")上方にある。流動化用の空気が孔を通して約350m³/時の速度および約55℃の温度で送入される。これは前記に従って鉄粒子を予熱し、かつ装置内を循環させるのに十分なものである。アクラワックスCスラリーをノズルから約40g/分の流量で30分間、空気吹付けする。最終外殻は封入鉄粒子の約0.8重量%からなっていた。粒子の約0.3重量%は外層で構成されていた。封入鉄粒子の約0.2重量%はアクラワックスC粒子から構成されていた。従って外層の75%および全外殻の25%がアクラワックスからなっていた。

【0027】次いでこうして被覆された鉄粒子から環状体の形の軟磁心を圧縮成形した。成形プレスから離れてその上方に配置された供給ホッパーに被覆粒子を装填した。約285℃に加熱された成形型(すなわちパンチおよびダイ)へ移動する間に粒子を約140℃に実質的に均一に予熱するオーガー式粒子供給機構へ、粒子を重力供給した。予熱された粒子を加熱された供給ホッパーへ供給し、次いでここからホッパーとダイの間を前後に往復する供給シュー(feed shoe)を経て成形ダイへ供給した。ダイが粒子で満たされたのち、加熱されたパンチがダイに進入し、内部の粒子を約50トン/in²(TSI)の圧力下にプレスし、これにより外殻を溶融させて他の封入鉄粒子に融着させ、これにより鉄粒子に対する連続マトリックスが形成された。次いでプレスされた部品をダイから取り出した。こうして作成された試料は密度7.35g/cc(理論密度7.57と対比)、透磁率200G/Oe、コアーロス2200J/m³、および抵抗率(0.15Ω-cm)を有していた。同じ様式で、ただし潤滑剤を存在させずに処理した同等の対照試料はわずか7.25g/ccの密度、わずか170G/Oeの透磁率、2200J/m³のコアーロス、および0.15Ω-cmの抵抗率を与えた。

【0028】例2

本発明の他の例において、それらの製造業者(ヘガネス・メタルズ)により等級1000Cと定められた鉄粒子(平均粒度100ミクロン)15kgをまず、10重量%のポリエーテルイミド(すなわちウルテム1000)および90重量%のMeCl₂からなる溶液で吹付け被覆した。こうして被覆された粒子を次いで、7重量%の

14

PTFE(すなわちテフロンMP1100)、2.3重量%のメチルメタクリレート-ブチルメタクリレートポリマー(すなわちアクリロイドB-66)および90.7重量%のアセトンからなるスラリーで、グラット・コーポレーションから購入したウルスター型コーター内において吹付け被覆した。PTFEは約5ミクロンの平均粒度を有していた。コーターは直径約17.8cm

(7")の外側容器(すなわち有孔床の高さにおいて)、および長さ/高さ25.4cm(10")、直径約7.6cm(3")の内側シリンダーを備えていた。外側容器は床の上方約40.6cm(16")の距離にわたって直径約22.9cm(9")にまで広がり、次いで円筒形になる。内側シリンダーの底はコーターの床から約1.3cm(1/2")上方にある。流動化用の空気が孔を通して約350m³/時の速度および約55℃の温度で送入される。これは前記に従って鉄粒子を予熱し、かつ装置内を循環させるのに十分なものである。PTFEスラリーをノズル12から約40g/分の流量で25分間、空気吹付けして、封入鉄粒子の約0.65重量%からなる外殻を形成した。粒子の約0.4重量%はPTFE-アクリレート外層で構成されていた。封入鉄粒子の約0.3重量%はPTFE粒子から構成されていた。従って外層の75%および全外殻の46%がPTFEからなっていた。

【0029】次いでこうして被覆された鉄粒子から環状体の形の軟磁心を圧縮成形した。成形プレスから離れてその上方に配置された供給ホッパーに被覆粒子を装填した。約230℃に加熱された成形型(すなわちパンチおよびダイ)へ移動する間に粒子を約110℃に実質的に均一に予熱するオーガー式粒子供給機構へ、粒子を重力供給した。予熱された粒子を加熱された供給ホッパーへ供給し、次いでここからホッパーとダイの間を前後に往復する供給シューを経て成形ダイへ供給した。ダイが粒子で満たされたのち、加熱されたパンチがダイに進入し、内部の粒子を約50TSIの圧力下にプレスし、これにより外殻を溶融させて他の封入鉄粒子に融着させ、これにより鉄粒子に対する連続マトリックスが形成された。次いでプレスされた部品をダイから取り出した。こうして作成された試料は密度7.45g/cc(理論密度7.69と対比)、透磁率350G/Oe、コアーロス1900-2200J/m³、および抵抗率(1.1Ω-cm)を有していた。同じ様式で、ただし潤滑剤を存在させずに処理した同等の対照試料はわずか7.25g/ccの密度、わずか170G/Oeの透磁率、2200J/m³のコアーロス、および0.15Ω-cmの抵抗率を与えた。

【0030】例3

本発明の他の例において、それらの製造業者(ゼネラル・モーターズ・コーポレーション)により等級MQP-Bと定められたNd-B-Fe粒子(平均粒度100ミ

クロン) 15 kg をまず、10 重量%のエポキシ樹脂 (すなわちエポキシ164、シェル・オイル・カンパニーから) および90 重量%のアセトンからなる溶液で吹付け被覆した。こうして被覆された粒子を次いで、2.9 重量%のエチレンビスステアレートアミド (すなわちアクラワックスC)、48 重量%のポリスチレンおよび92.3 重量%のトルエンからなるスラリーで、グラット・コーポレーションから購入したウルスター型コーター内において吹付け被覆した。アクラワックスCは約6ミクロンの平均粒度を有していた。コーターは直径約17.8 cm (7") の外側容器 (すなわち有孔床の高さにおいて)、および長さ/高さ25.4 cm (10")、直径約7.6 cm (3") の内側シリンダーを備えていた。外側容器は床の上方約40.6 cm (16") の距離にわたって直径約22.9 cm (9") にまで広がり、次いで円筒形になる。内側シリンダーの底はコーターの床から約1.3 cm (1/2") 上方にある。流動化用の空気が孔を通して約350 m³/時の速度および約35℃の温度で送入される。これは前記に従ってNd-B-Fe粒子を予熱し、かつ装置内を循環させるのに十分なものである。アクラワックスCスラリーをノズル12から約30 g/分の流量で50分間、空気吹付けして、封入Nd-B-Fe粒子の約2.3 重量%からなる外殻を形成した。封入粒子の約0.8 重量%はアクラワックスC-スチレン外層で構成されていた。全ポリマー外殻の約13 重量%およびアクラワックスC-スチレン層の37%がアクラワックスCからなっていた。

【0031】次いでこうして被覆されたNd-B-Fe粒子からペレットを圧縮成形した。成形プレスから離れてその上方に配置された供給ホッパーに被覆粒子を装填

した。粒子を供給ホッパーへ供給し、次いでここからホッパーとダイの間を前後に往復する供給シューを経て成形ダイへ供給した。ダイが粒子で満たされたのち、パンチがダイに進出し、内部の粒子を約50 T S I の圧力下にプレスし、これにより外殻を溶着させて他の封入Nd-B-Fe粒子に融着させ、これによりNd-B-Fe粒子に対する連続マトリックスが形成された。次いでペレットをダイから取り出し、175℃で30分間硬化させた。こうして作成された試料は密度5.9 g/cc (理論密度6.9と対比) および残留誘導 (Br) 8.13 キロガウスを有していた。同じ様式で、ただし潤滑剤を存在させずに処理した同等の対照試料はわずかに5.7 g/ccの密度を与え、7.94 キロガウスの残留誘導を有していた。

【0032】例4-11

ホールフロー (Hall Flow) 流動性試験を表1の試料A-Hと表示される数種類の乾燥粒子試料につき実施した。これらの結果を表1に示す。ホールフロー試験に従って、50 gの粉末を目盛り付きアルミニウムろうとに装入し、底から流出させた。ろうとが空になるのに要する時間が流動性の尺度であり、数値が低いほど (すなわち秒数が少ないほど)、より良好な流動性をもつ粉末を表す。これらの試験は、本発明に従ってそれらの表面に結合した潤滑剤を有する粒子は (1) 潤滑剤が存在しない粒子、および (2) 潤滑剤と単に機械的に混合した (V-ブレンドした) 粒子よりはるかに良好に流動することを示した。事実、V-ブレンドした試料はろうと内に留まり、全く流れなかった。

【0033】

【表1】

試料	粒子	x ウルテム	z アクリル	z 潤滑剤	処理	ホールフロー 秒/50cm
A	Fe	.25	.10	.10 PTFE	被覆 ¹	34.0
B	Fe	.25	.10	-0-	-	62.11
C	Fe	.25	.10	.10 PTFE	V-ブレンド	流れず
D	Fe	.50	.10	.2 Teflon ²	被覆 ¹	28.5
E	Fe	.60	0	.2 Teflon ²	V-ブレンド	37.3
		z EPOXY	z ポリスチレン			
F	Fe ₂ O ₃	1.5	.5	.5 Teflon ²	被覆 ¹	32.9
G	Fe ₂ O ₃	1.5	.5	.5 Teflon ²	V-ブレンド	流れず
H	Fe ₂ O ₃	1.5	.5	-0-	-	35-40

1-ウルスター被覆

2-幾つかの試料につき試験。

【0034】例12

0.08gのポリエーテルイミド樹脂(すなわちウルテム1000)を200mlのガラス容器内で4.0gのMeCl₂に溶解することにより、ポリマー溶液を調製した。15gの実質的に純粋な鉄粒子(すなわちヘガネス1000C)をポリマー溶液に攪拌混入して、スラリー

を調製した。次いでこのスラリーを混合乾燥処理した。その際、吹き込まれる空気の下で定常的に攪拌およびブレンドし、次いで約50-80℃で30分間風乾することにより、鉄粒子の被覆が行われる。この材料から50TSIで試料を室温圧縮成形した。これらの試料は以下に記載する他の試料に対する比較のための標準品またはベースラインとして用いられ、抵抗率約0.05Ω-cmを与えた。

【0035】例13

実質的に純粋な鉄粉末（ヘガネス1000C）を高分子結合剤に埋封されたテフロン層で被覆した。より詳細には、0.06gのウルテム1000、0.02gのテフロンMP1000（約12ミクロンの平均粒度を有する）および4.0gのMeC12を含有するスラリー状被覆組成物を調製し、ガラス容器内で約100ミクロンの平均粒度を有する純粋な鉄粉末15gと混合した。MeC12はポリエーテルイミドを溶解するが、テフロン粒子を溶解せず、蒸発した際にそれぞれの鉄粒子上にウルテムの被膜（約1.3ミクロンの平均厚さを有する）を残し、この被膜がテフロン粒子を埋封し、または鉄粒子の表面に接着する。こうして処理された粒子は極めて著しい滑らかなすべり感を示し、50TSIで室温圧縮成形すると約0.20Ω-cmの抵抗率を与え、これは潤滑剤を含有しない例12のベースライン試料において達成されたものより4倍大きい。

【0036】例14

0.04gのウルテム1000および4.0gのMeC12を含有する有機溶液を調製し、これを用いて15gの実質的に純粋な鉄粉末（ヘガネス1000C）をウルテム層で被覆した。こうして被覆された鉄粒子を次いで0.4gのテフロン粉末（MP1000）と機械的に混合して（結合剤なしに）、素材全体に分布した固定されていないテフロン粒子と混合されたウルテム被覆鉄粉末素材を調製した（すなわちテフロンは鉄粒子の表面にポリマー結合剤により結合してはいない）。この混合物を例13の場合と同様に圧縮成形した。それは実施13のものと同一の全ポリマー含量を有していたが、この例14の粒子は約0.06Ω-cmの抵抗率を与えたにすぎない。従ってウルテム被覆粒子にテフロン粒子を添加しただけでは（すなわち結合剤なし）、粒子間絶縁率は改良されないと思われる。

【0037】例15

実質的に純粋な鉄粉末をベースコートとしての第1有機層で被覆し、次いでオーバーコートとしてのテフロンを含有する第2有機層で被覆した。第1有機溶液は、0.02gのポリスチレン（ポリサイエンシズ・インコーポレーテッドにより販売、ペンシルベニア州ウォーリントン）を4.0gのメチルエチルケトンに溶解することにより調製された。このポリスチレン溶液を用いて、例12にウルテムによる被覆につき記載したと同様に15gの鉄粉末（ヘガネス1000C）を溶液中で溶剤がすべて蒸発するまで攪拌することにより粉末表面をポリスチレンで被覆した。次いでポリスチレン被覆鉄粉末を、4.0gのエタノールに溶解した0.04gのポリアクリル酸（ポリサイエンシズ・インコーポレーテッドにより販売、ペンシルベニア州ウォーリントン）およびそれからなるスラリーと混合し（すなわちビーカー内で攪拌

し）、ポリスチレン下層の上にアクリレート接着テフロンのトップコートを形成した。こうして処理された粒子は極めて著しい滑らかなすべり感を示し、50TSIで室温圧縮成形すると約0.52Ω-cmの抵抗率を与え、これは潤滑剤を含有しない例12のベースライン試料から得られたものより10倍大きい。

【0038】例16

(1) 0.05gのテフロン粉末（MP1000）、ならびに(2) 2.0gのMeC12および2.0gのトリクロロトリフルオロエタンを含有する溶剤混合物に溶解した0.05gの超高分子量ポリ（メチルメタクリレート）を含有するスラリーを調製した。このスラリーを用いて、予め0.04gのポリエーテルイミド（すなわちウルテム1000）で封入された15gバッチの鉄粉末（ヘガネス1000C）をオーバーコートした。こうして処理された粒子は極めて著しい滑らかなすべり感を示し、50TSIで室温圧縮成形すると0.91Ω-cmの抵抗率を与えた。

【0039】例17

3.0gのメチルエチルケトンに溶解した0.06gの低分子量ポリ（メチルメタクリレート）（ポリサイエンシズ・インコーポレーテッドにより販売、ペンシルベニア州ウォーリントン）を含み、かつそれに懸濁された0.06gのテフロン粉末（MP1000）を含有するスラリーを調製した。このスラリーを用いて、予め0.75%のウルテム1000で封入された15.0gバッチの鉄粒子をオーバーコートした。これらの粒子を50TSIで室温圧縮成形し、230℃で30分間アニールした。最終製品の抵抗率は8.65Ω-cmであり、これは0.75%のウルテム1000のみで被覆した鉄粒子から得られた抵抗率より約250倍大きい。

【0040】例18

例16の記載に従って製造した試料を空气中230℃で30分間アニールした。アニーリング処理は試料の抵抗率を0.91Ω-cmから1.80Ω-cmに、ほとんど倍加した。この例および例17は、圧縮製品をアニールするとさらに抵抗率の改良を達成しうることを示す。約50-約500℃のアニーリング温度が有用である。好ましくはアニーリング温度は100-300℃である。

【0041】例19

3.0gのメチルエチルケトンに溶解した0.03gの低分子量ポリ（メチルメタクリレート）（アルドリッチ・ケミカル・コーポレーションにより販売）を含み、かつそれに懸濁された0.03gのテフロン粉末（MP1000）を含有するスラリーを調製した。このスラリーを用いて、予め0.25%のウルテム1000で封入された15.0gバッチの鉄粒子をオーバーコートした。こうして処理された粒子は極めて著しい滑らかなすべり感を示し、50TSIで室温圧縮成形すると0.43Ω

—cmの抵抗率を与えた。

【0042】例20

例19と同様にして、ただしテフロン代わりにBN粒子（すなわちカーボランダム・コーポレーションから）を用いて試料を作成した。こうして作成された試料は例19で見られたような滑らかなすべり感を示さず、 $0.09\Omega\text{-cm}$ の抵抗率を与えたにすぎない。

【0043】例21

0.06g のポリ（ビニルピロリドン）（ポリサイエンシズ・インコーポレーテッドにより販売、ペンシルベニア州ウォーリントン）を 3.0g のエタノールに溶解することにより溶液を調製した。この溶液を用いて 15g の実質的に純粋な鉄粉末上にポリ（ビニルピロリドン）の第1またはアンダーコート析出させた。次いでメチ

ルエチルケトンに溶解した 0.03g の低分子量ポリ（メチルメタクリレート）を含み、かつそれに懸濁された 0.03g のテフロン粒子（MP1000）を含有するスラリーを調製した。このスラリーを用いて、この予め被覆された鉄粒子をオーバーコートした。こうして処理された粒子は極めて著しい滑らかなすべり感を示し、 50TSI で室温圧縮成形すると $0.39\Omega\text{-cm}$ の抵抗率を与えた。

【0044】例22-41

10 ヘガネス1000C粒子を表2に示した組成を有する被膜で吹付け被覆することにより幾つかの試料を製造した。

【0045】

【表2】

試料	ベースコート		トップコート			合計
	z ウルテム	z B-66	z PTFE	% アクラワックス		
A	0.2	0.10	0.05	--	--	
B	0.2	0.15	0.30	--	0.35	
C	0.2	0.20	0.20	--	0.65	
D	0.2	0.25	0.10	--	0.60	
E	0.25	0.10	0.30	--	0.55	
F	0.25	0.15	0.05	--	0.65	
G	0.25	0.20	0.10	--	0.45	
H	0.25	0.25	0.20	--	0.55	
I	0.3	0.10	0.20	--	0.65	
J	0.3	0.15	0.10	--	0.60	
K	0.3	0.20	0.05	--	0.55	
L	0.3	0.25	0.30	--	0.55	
M	0.35	0.10	0.10	--	0.85	
N	0.35	0.15	0.20	--	0.55	
O	0.35	0.20	0.30	--	0.70	
P	0.35	0.25	0.05	--	0.85	
Q	0.25	0.10	0.10	--	0.65	
R	0.25	0.1	--	--	0.45	
S*	0.75	--	--	0.20	0.35	
T*	0.25	0.10	0.10	--	0.95	
					0.45	

#55TSIにおいて成形

* 試料を機械的に混合 (V-ブレンド)。

【0046】試料A-Tのうち幾つかを232℃ (450° F) および60トン/in²の圧力で圧縮成形し、成形品を密度、降伏強さ (横破断棒 (transver

serupture bar) -TRB-を使用) および抵抗率につき試験した。結果を表3に示す。

【0047】

【表3】

試料	密度 (TRB) (g/cc)	降伏強さ k g / c m ² (psi)	抵抗率 (ohm-cm)
A	7.629	628.4 (8938)	0.13
B	7.532	577.6 (8215)	0.26
C	7.459	597.0 (8492)	0.41
D	7.469	721.3 (10260)	0.16
E	7.527	445.4 (6335)	1.08
F	7.479	652.7 (9384)	0.43
G	7.471	692.9 (9836)	0.45
H	7.374	593.4 (8440)	0.82
I	7.524	476.4 (6776)	0.88
J	7.491	542.8 (7721)	0.82
K	7.437	694.2 (9874)	0.56
L	7.355	463.1 (6588)	0.98
M	7.654	525.3 (7471)	0.99
N	7.435	494.4 (7032)	3.78
O	7.369	470.9 (6698)	6.34
P	7.315	665.8 (9470)	1.24
Q	7.40	836.7 (11900)	0.23
R	7.36	949.1 (13500)	0.09
S	7.195	372.6 (5300)	0.10
T	7.38	717.1 (10280)	0.18

#55TSIにおいて成形

* 試料を機械的に混合 (V-ブレンド)。

【0048】試料A-Tのうち幾つかを232℃ (450° F) および50トン/in²の圧力で圧縮成形し、成形品を (1) 密度 (g/cc)、(2) 磁束保持能 (flux carrying capacity) - Bmax (キログウス)、(3) 保磁力損失 (coer

cive loss) - Hc (エルステッド)、(4) 全コアロス - Wh (J/m³)、(5) 最大透磁率 - Umax (G/Oe)、(6) 渦電流損失 (J/m³)、および (7) 有効透磁率/コアロスにつき試験した。結果を表4に示す。

【0049】

【表4】

試料	(1) 密度 (g/cc)	(2) Bmax (KG)	(3) Hc (Oe)	(4) Wh (J/m ³)	(5) Umax (G/Oe)	(6) 渦電流損失 (J/m ³)
A	7.613	15.74	4.89	2250	422	157
B	7.451	15.73	4.85	2368	416	96
C	7.464	15.17	4.89	2184	392	127
D	7.436	14.91	4.99	2186	372	100
E	7.447	15.15	4.99	2206	326	91
F	7.403	14.99	4.97	2229	301	54
G	7.421	14.38	4.94	2077	284	69
H	7.425	15.47	5.06	2217	293	99
I	7.393	14.23	4.89	2050	292	103
J	7.396	16.79	4.95	2154	323	95
K	7.394	16.99	4.88	2133	319	106
L	7.338	13.61	4.93	1963	267	49
M	7.417	14.62	5.01	2206	303	--
N	7.408	14.76	4.9	2240	318	--
O	7.347	14.02	4.96	2182	275	--
P	7.358	13.67	4.97	2011	256	--
Q	--	--	--	--	--	--
R	--	--	--	--	--	--
S	7.175	13.14	5.34	2012	190	175
T	--	--	--	--	--	--

* 50Hz / 1500eの磁界で。

【0050】表4のデータを評価するに際しては、以下の点を考慮されたい：[a] 密度(1)については、高い数値ほど良好；[b] Bmax(2)については、高い数値ほど良好；[c] Hc(3)については、低い数値ほど良好；[d] Wh(4)については、低い数値ほど良好；[e] Umax(5)については、高い数値ほど

良好；[f] 渦電流(6)については、低い数値ほど良好。

【0051】最後に、試料A-Tのうち幾つかを50トン/in²で室温圧縮成形し、表5に示す抵抗率を得た。

【0052】

【表5】

試料	抵抗率 Ohm-cm	試料	抵抗率 Ohm-cm	試料	抵抗率 Ohm-cm
A	0.18	H	0.45	N	0.95
B	0.14	I	0.35	O	1.21
C	0.17	J	0.35'	P	1.3
D	0.15	K	0.61		
E	0.43	L	0.69		
F	0.39	M	0.69		
G	0.49				

全般的に、試験により以下の点が示された：(1) 強磁性粒子の表面に接着された有機潤滑剤粒子、特に PTFE 粒子は、粒子の乾燥流動性を改良し、かつ卓越した密度、抵抗率および磁性を得るために重要である；(2) それらの潤滑剤粒子で吹付け被覆された強磁性粒子は、V-ブレンドした潤滑剤粒子より良好な性能を示す；

(3) PTFE は室温圧縮成形試料の密度に有意の影響

を及ぼさなかった；ならびに (4) 1 層外殻より 2 層外殻、特に上層が下層より低いメルトフローを有するものの方が良好である。

【0053】本発明をその特定の態様につき開示したが、それらに限定することを意図したものではなく、本発明は請求の範囲によってのみ限定される。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 ウルスター型の流動流れコーターを断面透視図で示す。

【図 2】 封入された強磁性粒子を示す。

【図 3】 図 2 の 3-3 の方向に見た部分拡大図である。

【図 4】 封入された強磁性粒子を示す。

【図 5】 図 4 の 5-5 の方向に見た部分拡大図である。

【符号の説明】

2 外側円筒形容器

4 有孔床

6, 10 孔

8 内側シリンダー

12 吹付けノズル

14 噴霧液

16 粒子の循環方向

18 2 と 8 の間の環状帯域

20, 28 強磁性コア

22 単層高分子外殻

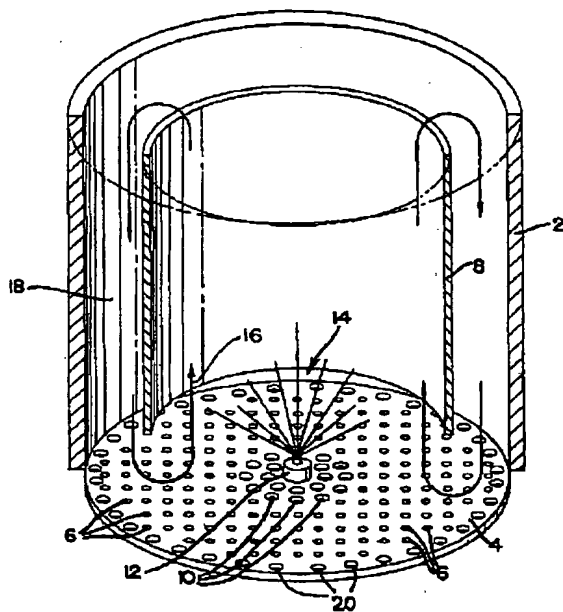
24, 34 潤滑剤粒子

26, 36 ポリマー被膜

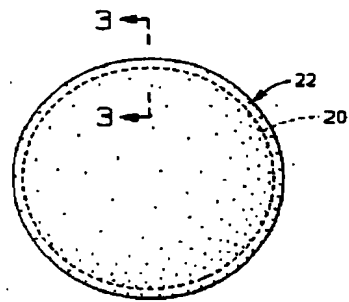
30 下層 (マトリックス形成性ポリマー層)

10 32 上層 (潤滑剤および結合剤を含む層)

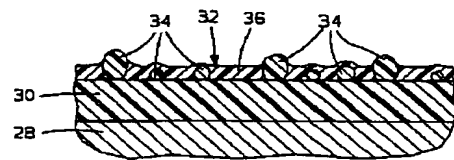
【図 1】



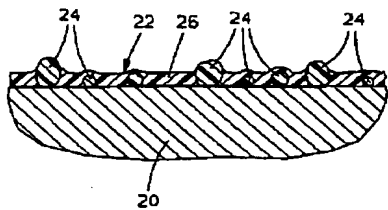
【図 2】



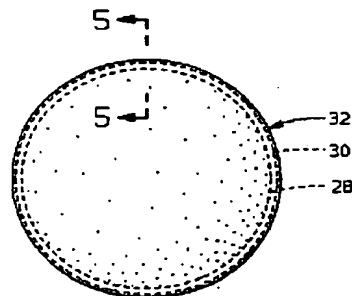
【図 5】



【図 3】



【図 4】



フロントページの続き

(72) 発明者 ハワード・ホンドウ・リー
アメリカ合衆国ミシガン州48302, ブルー
ムフィールド・ヒルズ, デリー・ロード
4350